

有机砷饲料添加剂对猪场周围及 农田环境污染的调查研究

王付民, 陈杖榴*, 孙永学, 高延玲, 余静贤

(华南农业大学 广东省兽药研制与安全评价重点实验室, 广州 510642)

摘要:对广东省长期使用阿散酸为饲料添加剂的 15 个大型猪场的周围环境及农田进行了调查, 结果表明: 猪场内长期施用猪粪为肥料的甘薯根内的总砷含量已为国家规定最高检出限(0.5 mg/kg) 的 3~6 倍; 甘薯地土壤的砷含量介于 25.83~55.54 mg/kg, 远远大于自然界最高砷含量的背景值(15 mg/kg); 而且甘薯的各种组织的总砷含量与土壤砷含量成正比。绝大多数猪场鱼塘水的砷含量已超过渔业水质标准 0.05 mg/L; 虽然鱼肌肉的总砷含量未超过国家规定标准 0.5 mg/kg, 但是在鱼的可食性组织脂肪、脑的总砷含量却远远超标, 约为肌肉组织中 3~4 倍。猪场排污口附近的土壤, 砷污染范围介于 200~500m 之间; 其中在距排污口约 5m、50m 的土壤, 砷的含量远超过自然界的砷含量的最高背景值 15 mg/kg。长期施用猪粪作为肥料的稻田, 大多数土壤砷含量已超过国家规定的最高标准; 另外, 水稻有一定的砷富集能力, 而且水稻各种组织的砷含量与土壤的砷含量也存在明显的正相关。

关键词:阿散酸; 猪场; 环境污染; 调查研究

文章编号: 1000-0933(2006)01-0154-09 中图分类号: Q143, S154.1, X508 文献标识码: A

Investigation on the pollution of organoarsenical additives to animal feed in the surroundings and farmland near hog farms

WANG Fu-Min, CHEN Zhang-Liu*, SUN Yong-Xue, GAO Yan-Ling, YU Jing-Xian (College of Veterinary Medicine, South China Agricultural University, Guangzhou, 510642, China). *Acta Ecologica Sinica*, 2006, 26(1): 154~162.

Abstract: Arsenic is one of the most relevant global environmental toxicants. It can be accumulated in plants and animals, and can eventually be transferred to human beings. Chronic arsenic poisoning can cause serious health problems including cancers, hyperkeratosis, restrictive lung disease, and ischaemic heart disease. Research on environmental fate of arsenic has thus received increasing attention in recent years. Organic arsenic compounds (e.g., roxarsone and arsanilic acid) are widely added to animal feed to promote growth rates by controlling parasitic diseases. The resulting arsenic-bearing wastes are currently introduced to the environment (soil, pond, and river) or used to fertilize croplands. However, little is known about the environmental fate of these compounds and their environmental and health impacts.

The pollution of surroundings and farmlands around 15 hog farms used arsanilic acid as pig feed additives were investigated in Guangdong province, China. Study results showed that concentrations of arsenic in sweet potato harvested from contaminated field had reached a level of 3~6 times higher than the maximal residue limit (MRL) of 0.5 mg/kg based on the current national standard. Arsenic concentrations in soil for growing sweet potato were 25.83~55.54 mg/kg, which highly exceeded the maximal background level of 15 mg/kg in soil as defined in the national standard. Moreover, arsenic concentrations in different tissues of the

基金项目:国家自然科学基金重点资助项目(30130140)

收稿日期:2005-03-18; **修订日期:**2005-11-24

作者简介:王付民(1977~), 男, 河南叶县人, 博士生, 主要从事兽药生态毒理学研究. E-mail: Wangfuming@peoplemail.com.cn

* 通讯作者 Author for correspondence. E-mail: chenlz@scau.edu.cn

Foundation item: National Natural Science Foundation of China (No.30130140)

Received date: 2005-03-18; **Accepted date:** 2005-11-24

Biography: WANG Fu-Min, Ph.D. candidate, Mainly engaged in ecotoxicity of veterinary drugs. E-mail: Wangfuming@peoplemail.com.cn

sweet potato directly related to arsenic concentrations in the soil. The arsenic concentrations in fish pond water exceeded the standard of fishery water quality of 0.05 mg/kg. Although arsenic concentrations in fish muscle samples did not reach the maximal residue limit (0.5 mg/kg), other edible fish tissues such as brain and fat reached a residual level of 3 ~ 4 times higher than those in the muscle. The results also showed that the range of arsenic pollution was within 200 ~ 500 meters from the pig farms, and pollutant concentrations in soil samples collected about 5m and 50m away from drainage holes had exceeded the 15 mg/kg maximal background limit. Most of rice fields with long history of receiving swine feces as fertilizer had exceeded the established maximal limit (15 mg/kg). In addition, study results suggested that rice had the ability of concentrating the arsenic. Furthermore, the arsenic concentrations in different tissues of rice presented significantly positive correlation to the concentrations in the soil.

Key words: arsanilic acid; hog farm; environmental pollution; investigation

砷毒害和砷污染是人们日益关注的世界性问题。人类长期在低浓度的砷环境中会危害人体健康,砷的过量摄入也可导致各种癌症^[1, 2]。有机肿饲料添加剂(洛克沙砷、阿散酸)具有抗寄生虫病、促进动物生长、改善动物生产品质等多重作用,在畜牧养殖业中被大量使用。因而,大量的砷随动物的排泄物进入环境中。据国内外有关资料,这些含砷的排泄物或以有机肥料进入农田,或直接排至鱼塘、河流;毋庸置疑,这些砷将对生物的生存环境产生重大影响^[3-6]。

目前,国内外已对包括有机肿在内的兽药及饲料添加剂的生态毒性非常关注,并已进行一定研究^[7, 8];但有机肿饲料添加剂的生态毒性的研究资料非常匮乏,特别是对养殖场周围及农田污染的研究资料尚为空白。这些砷在猪场周围环境中达到多高浓度?是否随食物链在农作物与鱼体内富集而危害人类呢?这些都是迫切需要了解的问题。本研究选择广东省养殖规模在万头以上,且使用阿散酸作为饲料添加剂的 15 个大型养猪场进行调查研究,以期评估有机肿饲料添加剂的生态毒性,并为探讨与治理对策提供资料。

1 材料与方法

1.1 材料

(1)样本 本实验样本取自 15 个万头猪场,这些猪场使用阿散酸作为饲料添加剂均在 3a 以上;这些猪场广泛分布在广东省的深圳、清远、云浮、阳江、江门、东莞、佛山等 7 个地市。

(2)试剂 氢氧化钠、硼氢化钾、硫脲、抗坏血酸、盐酸、砷标准贮备液、30% 双氧水、浓硝酸等(所用试剂均为国产优级纯试剂;用水为去离子超纯水)。

(3)仪器 AFS-230 型原子荧光光度计;MKⅢ型微波消解仪;电子恒温加热仪等。

1.2 方法

1.2.1 样品的采集

(1)土样 猪场的甘薯地、施用猪粪的稻田;均采取随机采样的方法采集表层土样(0 ~ 15 cm)约 200 g,采样数分别为:15, 18 个。猪场排污口附近的土壤,以距排污口约 5, 50, 200m 和 500m 的距离,且以此为中心沿 3 个方向采集土样,在每个采样点附近呈 S 型采集土样 5 个,共计 15 个。

(2)塘水与污水 水塘周围,均采集表层水样 10 个;排污口采集污水,共计 5 个;每个样品不少于 50 ml。

(3)塘泥 在水塘周围每个水样采集点附近采集塘泥约 500 g,共计 10 个。

(4)风眼莲 随机采 10 株,分别取茎、叶用自来水洗净,剪碎后装于样品袋中, - 20℃ 保存。

(5)甘薯 选取在猪场内的甘薯地 2 ~ 3 块,每块随机采集甘薯 15 棵,分别取根、茎、叶,用自来水冲洗干净,剪碎后装于样品袋中, - 20℃ 保存。

(6)水稻 选取在每个猪场周围,而且经常施用猪粪作为肥料的稻田 3 块,每块随机采集水稻 6 株,分别取根、茎、叶用自来水洗净,剪碎后装于样品袋中, - 20℃ 保存。

(7)鱼样 在猪场附近的鱼塘,采用鱼网捕鱼,选取约 1kg 重的鱼 5 条,装于样品袋中, - 20℃ 保存。

1.2.2 样品的处理

(1)土样 各土样置于室内风干后,压碎,检出石子及动植物残渣,用玛瑙研钵研碎后过 100 目尼龙筛后,

充分混匀装于塑料样品袋中保存。

(2)塘泥 室内自然风干,处理方法同土样。

(3)甘薯 分别取根、茎、叶进一步剪碎,用匀浆机匀浆,置于烘箱 60℃烘干后,用玛瑙研钵研碎后过 100 目尼龙筛,充分混匀装于塑料样品袋中保存。

(4)水稻 处理方法同甘薯。

(5)鱼样 分别取肌肉、脂肪、脑、鳃、内脏,匀浆后装于样品袋中, - 20℃保存。

1.2.3 样品的消化

(1)土壤与塘泥 土壤及塘泥采用修改的 EPA3050 方法^[9],即先用 1:1 的 $\text{HNO}_3:\text{H}_2\text{O}_2$ (V:V)进行预消化,然后用 H_2O_2 进一步消化。

(2)塘水与污水 取水样,充分摇匀后,吸取 2.5 ml 于 25 ml 的玻璃比色管中,加入 1 ml 的 1:1 的王水(浓 HCl :浓 $\text{HNO}_3 = 3:1$),充分摇匀后,置于 95℃的恒温水浴锅中水浴 1h,90℃水浴赶酸 30min。

(3)甘薯、水稻、风眼莲 按常规方法进行消化,见参考文献^[10]。

(4)鱼样 取 0.25 g 各样品于微波消解罐的容样杯中,方法同甘薯与水稻。

1.2.4 测定方法

(1)测定方式 直接测荧光强度,由 AFS-230 型原子荧光光度计自动根据标准曲线回归方程求各样品的砷浓度。

(2)检测限 在实验进行的前、中、后共进行了 3 次相对标准偏差(RSD)和检测限(LOD)的测定。分别为 (RSD, LOD):0.89%, 0.0684 $\mu\text{g/L}$; 0.78%, 0.0342 $\mu\text{g/L}$; 0.84%, 0.0829 $\mu\text{g/L}$ 。

(3)标准曲线的制备 取 5 个 50 ml 和 1 个 100 ml 的容量瓶标号:0, 1, 2, 3, 4, 5(0 号为 100 ml);依次加入 200ng/ml 砷标准使用液 0, 0.5, 1.25, 2.5, 5, 10ml(相当于 2, 5, 10, 20, 40 $\mu\text{g/L}$ 的砷标准系列),先加入少量的去离子水,再加入浓盐酸 1.5 ml,硫脲-抗坏血酸混合溶液 5 ml,用超纯水定容至刻度,混匀,上机测定。

(4)回收率的测定 取土样、甘薯、塘水等样品,每个样品设 5 个重复,先测本底值,后在样品中加入 10 $\mu\text{g/ml}$ 的砷标准溶液,按测本底值同样的方法测总砷浓度,按如下公式进行计算:回收率 = (测定总浓度 - 本底浓度)/加入砷标后终浓度 $\times 100\%$,各样品的回收率测定值见表 1。

1.3 数据分析

采用统计分析软件 Statistica^[11] 进行数据分析。

2 结果与分析

2.1 甘薯地土壤与甘薯根、茎、叶的砷含量及相关关系

甘薯地土壤砷含量的范围为 25.83 ~ 55.54 mg/kg,其砷含量的平均值为 38.83 mg/kg,约为对照甘薯地土壤的 4.2 倍(见表 2),远远大于我国自然界最高砷背景值 15 mg/kg^[12];这说明甘薯地土壤由于长期施用以阿散酸为饲料添加剂的猪粪作为肥料,使猪场内甘薯地土壤具有相当高的砷含量。

猪场内甘薯的根、茎、叶的砷含量的平均值分别为:2.22, 1.59, 1.93 mg/kg;对照甘薯的根、茎、叶的砷含量的平均值分别为:0.30, 0.19, 0.24 mg/kg(表 3)。表明甘薯对砷有较强的富集能力。另外,各个猪场内甘薯根的总砷含量已达国家规定最高检出限(0.5 mg/kg)^[10] 的 3 ~ 6 倍;甘薯根是接触土壤的直接部位,可能是其具有较高的总砷含量的直接原因。

甘薯地土壤及甘薯根、茎、叶的砷含量的相关分析表明(图 1),土壤的砷含量与甘薯的根、茎、叶的砷含量存在极其显著的正相关($p < 0.01$)。

2.2 污水、塘泥、塘水、风眼莲的茎与叶砷含量

污水、塘泥、塘水以及风眼莲的茎与叶的砷含量分析结果(表 4)表明,各个猪场的污水中均有较高的砷含量,其平均值为 0.55 mg/L,表明猪场污水虽经过 3 级处理,但仍具有较高的砷含量。塘泥中也有较高的砷含量,平均值为 37.15 mg/kg,表明塘泥可能对砷有较强的吸附能力。大多数猪场鱼塘的塘水的砷含量已超过国

表 1 各种样品($\mu\text{g/L}$)的回收率测定结果^①

Table 1 The recovery rate of different samples

样品 Sample	本底浓度 Basic concentration	加砷标 后终浓度 Final arsenic concentration	测定总浓度 Total arsenic concentration	回收率 Recovery (%)
土壤 Soil	5.24 ± 0.05	5	9.78 ± 0.22	90.8
塘泥 Pond mud	6.71 ± 0.05	5	11.57 ± 0.15	97.2
塘水 Pond water	6.20 ± 0.09	5	10.95 ± 0.07	95.0
污水 Sewage	8.52 ± 0.06	5	13.15 ± 0.11	92.6
甘薯根 Sweet potato rootstalk	5.08 ± 0.12	5	9.83 ± 0.29	95.4
甘薯茎 Sweet potato stem	3.46 ± 0.07	5	8.22 ± 0.12	95.2
甘薯叶 Sweet potato leaf	3.82 ± 0.05	5	8.72 ± 0.07	98.0
凤眼莲叶 <i>Eichhornia</i> <i>crassipes</i> leaf	4.75 ± 0.07	5	9.20 ± 0.11	89.0
凤眼莲茎 <i>Eichhornia</i> <i>crassipes</i> stem	4.33 ± 0.04	5	8.89 ± 0.09	91.2
肌肉 Muscle	2.19 ± 0.06	5	7.27 ± 0.15	101.6
鱼脑 Brain	9.28 ± 0.14	10	18.94 ± 0.10	96.6
脂肪 Fat	7.35 ± 0.08	10	15.94 ± 0.25	85.9
鱼鳃 Gill	19.45 ± 0.15	20	38.38 ± 0.52	94.7
内脏 Bowel	26.31 ± 0.64	20	45.06 ± 1.50	93.8

* 加入砷标后终浓度 = 加入砷标准溶液体积(ml) × 10 $\mu\text{g/ml}$ × 1000 / (25 × 稀释倍数) Final arsenic concentration = Volume of arsenic standard solution(ml) × 10 $\mu\text{g/ml}$ × 1000 / (25 × dilution multiple); ①平均值 ± 标准误 Mean ± S.E, n = 5

表 2 15 个猪场内甘薯地土壤的砷含量 (mg/kg)^①

Table 2 Arsenic concentration of sweet potato soil in 15 hog farms

猪场 Hog farm	甘薯地土壤 Sweet potato soil		
	第 1 块 First block	第 2 块 Second block	第 3 块 Third block
1	41.75 ± 7.81	38.87 ± 5.68	46.57 ± 6.34
2	40.32 ± 5.31	27.36 ± 4.41	39.06 ± 6.17
3	32.16 ± 3.73	32.86 ± 5.56	31.69 ± 4.15
4	37.49 ± 3.24	36.49 ± 4.14	37.01 ± 6.47
5	32.73 ± 3.84	34.74 ± 4.50	39.36 ± 5.90
6	35.21 ± 3.16	36.69 ± 4.22	34.37 ± 3.90
7	37.18 ± 5.47	46.70 ± 5.67	47.45 ± 5.46
8	25.83 ± 2.97	36.85 ± 3.59	41.67 ± 5.15
9	49.56 ± 6.38	51.19 ± 5.87	42.88 ± 4.06
10	32.13 ± 3.18	30.87 ± 3.27	42.65 ± 4.69
11	52.62 ± 5.25	42.60 ± 4.98	38.32 ± 3.77
12	29.14 ± 3.18	35.97 ± 2.95	40.35 ± 4.05
13	53.62 ± 7.44	32.92 ± 3.50	37.91 ± 3.24
14	32.11 ± 3.45	41.77 ± 4.60	ND
15	55.54 ± 5.65	36.92 ± 4.09	ND
Mean ± S.E		38.83 ± 1.00	
对照 Control		9.26 ± 0.60	

* ND 表示没有测定 ND means sample had not been detected; ①平均值 ± 标准误 Mean ± S.E, n = 15

表 3 15 个猪场内甘薯根、茎、叶的砷含量 (mg/kg)^①

Table 3 Arsenic concentration of sweet potato rootstalk, stem and leaf in 15 hog farms

猪场 Hog farm	甘薯根 Sweet potato rootstalk			甘薯茎 Sweet potato stem			甘薯叶 Sweet potato leaf		
	第 1 块 First block	第 2 块 Second block	第 3 块 Third block	第 1 块 First block	第 2 块 Second block	第 3 块 Third block	第 1 块 First block	第 2 块 Second block	第 3 块 Third block
1	2.41 ± 0.23	2.04 ± 0.19	2.77 ± 0.24	1.67 ± 0.09	1.48 ± 0.10	1.77 ± 0.09	2.12 ± 0.11	1.86 ± 0.12	2.35 ± 0.11
2	2.12 ± 0.22	1.82 ± 0.18	2.07 ± 0.22	1.54 ± 0.07	1.31 ± 0.06	1.62 ± 0.10	1.83 ± 0.10	1.67 ± 0.09	1.86 ± 0.13
3	1.95 ± 0.19	2.01 ± 0.19	2.05 ± 0.21	1.30 ± 0.09	1.53 ± 0.08	1.60 ± 0.09	1.66 ± 0.11	1.84 ± 0.12	1.75 ± 0.12
4	2.21 ± 0.19	2.04 ± 0.19	2.11 ± 0.20	1.64 ± 0.11	1.39 ± 0.09	1.52 ± 0.09	1.92 ± 0.13	1.76 ± 0.12	1.85 ± 0.14
5	1.89 ± 0.18	1.98 ± 0.20	2.10 ± 0.20	1.29 ± 0.07	1.42 ± 0.08	1.56 ± 0.10	1.62 ± 0.10	1.82 ± 0.13	1.86 ± 0.12
6	2.13 ± 0.18	2.22 ± 0.19	2.18 ± 0.19	1.36 ± 0.08	1.55 ± 0.11	1.53 ± 0.09	1.68 ± 0.13	1.75 ± 0.14	1.84 ± 0.15
7	2.23 ± 0.24	2.76 ± 0.23	2.53 ± 0.19	1.56 ± 0.11	1.97 ± 0.12	1.82 ± 0.10	1.95 ± 0.13	2.35 ± 0.14	2.23 ± 0.12
8	1.65 ± 0.17	2.16 ± 0.22	2.32 ± 0.21	1.25 ± 0.07	1.58 ± 0.11	1.75 ± 0.11	1.57 ± 0.14	1.86 ± 0.12	2.06 ± 0.14
9	2.88 ± 0.16	2.81 ± 0.21	2.26 ± 0.16	2.02 ± 0.11	1.90 ± 0.10	1.66 ± 0.08	2.43 ± 0.10	2.30 ± 0.13	1.99 ± 0.11
10	1.82 ± 0.17	1.88 ± 0.22	2.25 ± 0.17	1.30 ± 0.09	1.36 ± 0.07	1.69 ± 0.11	1.59 ± 0.13	1.60 ± 0.11	1.98 ± 0.13
11	3.00 ± 0.22	2.35 ± 0.19	2.18 ± 0.22	1.99 ± 0.09	1.81 ± 0.10	1.65 ± 0.12	2.49 ± 0.11	2.05 ± 0.11	1.89 ± 0.16
12	1.85 ± 0.19	2.06 ± 0.16	2.22 ± 0.23	1.36 ± 0.08	1.56 ± 0.09	1.70 ± 0.10	1.66 ± 0.15	1.86 ± 0.12	2.01 ± 0.13
13	2.94 ± 0.22	1.97 ± 0.24	1.94 ± 0.22	2.03 ± 0.10	1.43 ± 0.10	1.44 ± 0.09	2.52 ± 0.11	1.77 ± 0.15	1.74 ± 0.12
14	1.94 ± 0.16	2.09 ± 0.20	ND	1.43 ± 0.08	1.56 ± 0.11	ND	1.72 ± 0.12	1.88 ± 0.13	ND
15	3.13 ± 0.20	2.03 ± 0.22	ND	1.92 ± 0.09	1.58 ± 0.10	ND	2.62 ± 0.10	1.82 ± 0.14	ND
Mean ± S.E		2.22 ± 0.05			1.59 ± 0.03			1.93 ± 0.04	
对照 Control		0.30 ± 0.03			0.19 ± 0.05			0.24 ± 0.04	

* ND 表示没有测定 ND means sample had not been detected; ①平均值 ± 标准误 Mean ± S.E, n = 15

家规定的渔业水质标准 0.05mg/L^[13],但和调查预期估计的砷含量相差较远。这可能是因为所调查的猪场均为广东省大型正规化养猪场,对粪尿严格采取 3 级处理模式,因此进入鱼塘的砷较少;但我国目前绝大多数猪场规模较小,对粪尿处理较为简单,甚至有些猪场将粪便直接冲入鱼塘;因此,实际中由有机肿饲料添加剂导致的砷污染比调查的要严重的多。凤眼莲的茎与叶的总砷含量平均值分别为:0.48,0.58 mg/kg;说明凤眼莲

对砷有一定的富集能力(塘水的砷含量的平均值为 0.070 mg/L)。

2.3 鱼的各组织的砷含量及塘水与鱼的可食性组织砷含量相关关系

从鱼的各组织的砷含量分析结果(表 5)可以看出, 鱼的肌肉组织中的砷含量较低, 介于 0.13~0.32 mg/kg 之间, 未超过国家规定标准 0.5 mg/kg; 但是, 含脂类较多的组织脂肪、鱼脑中的砷含量却远远超标, 且约为肌肉组织中 3~4 倍, 说明含脂类较多的组织对砷有较强的富集能力。另外, 鱼鳃及内脏中的砷含量较高, 其平均值分别为: 1.94, 3.65 mg/kg, 其主要原因可能与这些器官和外界环境相接触有关。

图 2 是塘水与鱼的可食性组织砷含量相关分析图。Fig.1 Correlation analysis of soil and sweet potato rootstalk, stem, leaf about arsenic concentration

由图 2 可以看出, 鱼的可食性组织(肌肉、脂肪、脑)的砷含量, 在一定程度上与塘水中的砷含量成明显的正相关($p < 0.01$), 这说明水体砷浓度的增加是鱼的可食性组织中含砷量增加的原因之一。

表 4 15 猪场水塘的污水、塘水、塘泥及凤眼莲的茎与叶的砷含量(mg/kg 或 mg/L)^①

Table 4 Arsenic concentration of sewage, pond water, pond mud, stem and leaf of *Eichhornia crassipes* in pond of 15 hog farms

猪场 Hog farm	污水 (n=5) Sewage	塘水 (n=10) Pond water	塘泥 (n=10) Pond mud	凤眼莲 <i>Eichhornia crassipes</i> (n=10)	
				茎 Stem	叶 Leaf
1	0.70 ± 0.09	0.079 ± 0.022	41.22 ± 3.41	0.44 ± 0.03	0.64 ± 0.04
2	0.90 ± 0.08	0.071 ± 0.014	40.49 ± 3.28	0.49 ± 0.03	0.61 ± 0.04
3	0.41 ± 0.08	0.087 ± 0.021	42.05 ± 3.62	ND	ND
4	0.45 ± 0.08	0.044 ± 0.009	32.14 ± 3.55	0.52 ± 0.03	0.65 ± 0.04
5	0.49 ± 0.09	0.110 ± 0.018	44.55 ± 3.00	0.51 ± 0.03	0.61 ± 0.04
6	0.35 ± 0.04	0.056 ± 0.014	34.22 ± 3.28	ND	ND
7	0.68 ± 0.08	0.120 ± 0.018	44.19 ± 3.29	0.55 ± 0.03	0.65 ± 0.04
8	0.46 ± 0.07	0.040 ± 0.018	31.96 ± 2.89	0.43 ± 0.03	0.52 ± 0.04
9	0.34 ± 0.05	0.038 ± 0.009	33.05 ± 1.75	0.44 ± 0.03	0.55 ± 0.05
10	0.57 ± 0.07	0.120 ± 0.014	40.98 ± 2.74	ND	ND
11	0.57 ± 0.08	0.045 ± 0.013	33.46 ± 1.59	0.45 ± 0.03	0.53 ± 0.03
12	0.48 ± 0.05	0.071 ± 0.013	40.12 ± 2.21	ND	ND
13	0.60 ± 0.07	0.046 ± 0.014	30.25 ± 1.77	ND	ND
14	0.72 ± 0.13	0.054 ± 0.013	31.33 ± 1.83	0.47 ± 0.03	0.54 ± 0.03
15	0.51 ± 0.08	0.070 ± 0.012	37.30 ± 2.19	0.46 ± 0.03	0.54 ± 0.03
Mean ± S.E	0.55 ± 0.04	0.070 ± 0.007	37.15 ± 1.30	0.48 ± 0.01	0.58 ± 0.02

* ND 表示没有测定 ND means sample had not been detected; ①平均值 ± 标准误 Mean ± S.E

2.4 排污口附近土壤砷的含量

排污口附近土壤砷的含量分析结果(表 6)表明, 在距排污口 5, 50, 200, 500 m 的土壤的砷含量的平均值分别为: 33.13, 23.15, 16.07, 8.03 mg/kg; 在距排污口 200 m 以下时, 土壤砷的含量均高于自然界最高背景值 15 mg/kg; 而在距排污口 500 m 的距离时已低于该标准。这说明所调查猪场的砷污染范围介于 200~500 m 之间, 因雨水冲刷造成猪场附近砷污染是有限的; 但随着时间推移, 猪场排泄砷量的增加, 猪场周围的砷污染范围必将扩大。

2.5 稻田砷含量、水稻各组织砷含量及稻田与水稻的各组织砷含量相关关系

根据稻田砷含量、水稻各组织砷含量的分析结果(表 7)可知, 稻田土壤砷含量的范围介于 14.52~22.32 mg/kg; 另外, 稻田土壤中砷含量的平均值为 18.65 mg/kg, 已超过自然界水田最高背景值 15 mg/kg, 并且其平均

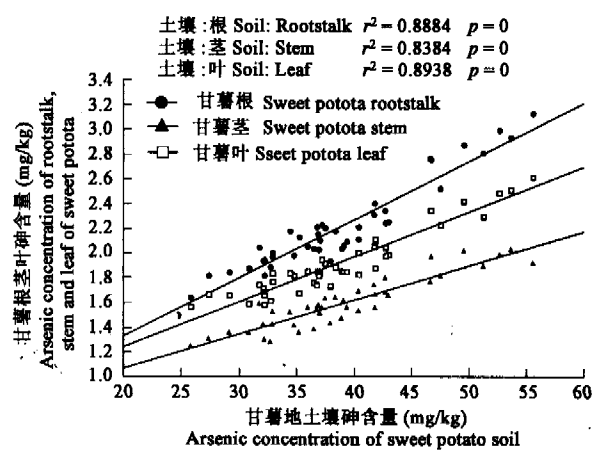


图 1 甘薯地土壤及甘薯根、茎、叶的砷含量的相关分析

值约为对照稻田土壤中砷含量的 2.2 倍。这主要是因为稻田使用含砷的猪粪,年限在 3 ~ 5a 之间,每 666.7 m² 使用量在 10 ~ 15t/a。值得注意的是,土壤中危害水稻生长的砷含量的临界值为 30 mg/kg,而且有资料表明当土壤中的砷含量达 25 mg/kg 时,水稻减产 10%^[14];本实验所调查的 15 块稻田中已有 5 块砷的含量超过 20 mg/kg,最高砷含量已达 22.32 mg/kg;因此,这些砷随着粪便进入农田,可以预见在有限的时间内,必将危害水稻的生长,进而影响人类的食品安全。施肥水稻的根、茎、叶砷含量的平均值为:16.68,3.63,3.94 mg/kg;对照水稻的根、茎、叶砷含量为:8.76,1.33,2.05 mg/kg;表明水稻有一定的砷富集能力,尤其是水稻的根组织有较强的砷富集能力。稻田土壤的砷含量与水稻各个组织(根、茎、叶)的砷含量呈现明显的正相关关系(见图 3),即随着土壤砷浓度的提高,水稻各组织砷含量明显增加($p < 0.01$)。

表 5 15 猪场水塘中鱼的肌肉、脑、脂肪、鳃、内脏的砷含量(mg/kg)^①

Table 5 Arsenic concentration of fish, brain, fat, gill and bowel in pond of 15 hog farms

猪场 Hog farm	肌肉 Muscle	脑 Brain	脂肪 Fat	鳃 Gill	内脏 Bowel
1	0.22 ± 0.017	0.93 ± 0.066	0.64 ± 0.076	1.95 ± 0.070	3.17 ± 0.312
2	0.19 ± 0.015	0.82 ± 0.047	0.55 ± 0.045	1.90 ± 0.094	3.70 ± 0.501
3	0.24 ± 0.033	1.06 ± 0.038	0.70 ± 0.036	2.04 ± 0.097	4.24 ± 0.342
4	0.14 ± 0.015	0.76 ± 0.050	0.44 ± 0.039	1.63 ± 0.067	3.43 ± 0.350
5	0.27 ± 0.012	0.99 ± 0.041	0.71 ± 0.051	2.19 ± 0.078	3.69 ± 0.243
6	0.16 ± 0.012	0.76 ± 0.037	0.53 ± 0.051	1.82 ± 0.041	3.12 ± 0.282
7	0.30 ± 0.019	1.10 ± 0.059	0.71 ± 0.044	2.25 ± 0.094	5.13 ± 0.524
8	ND	ND	ND	ND	ND
9	0.13 ± 0.011	0.67 ± 0.047	0.45 ± 0.037	1.47 ± 0.079	3.27 ± 0.351
10	0.32 ± 0.021	0.97 ± 0.041	0.73 ± 0.054	2.39 ± 0.130	3.95 ± 0.256
11	ND	ND	ND	ND	ND
12	ND	ND	ND	ND	ND
13	0.14 ± 0.013	0.76 ± 0.058	0.52 ± 0.034	1.76 ± 0.057	2.96 ± 0.311
14	0.15 ± 0.015	0.83 ± 0.046	0.49 ± 0.048	1.91 ± 0.043	3.51 ± 0.363
15	ND	ND	ND	ND	ND
Mean ± S. E	0.21 ± 0.021	0.79 ± 0.077	0.59 ± 0.034	1.94 ± 0.082	3.65 ± 0.187

* ND 表示没有测定 ND means sample had not been detected; ①平均值 ± 标准误 Mean ± S. E, n = 5

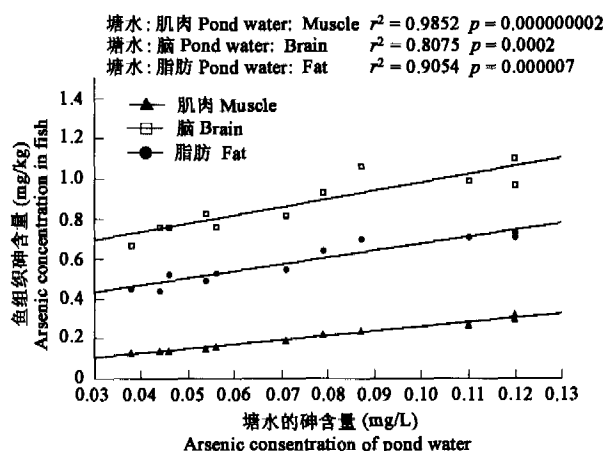


图 2 塘水与鱼的肌肉、脂肪、脑砷含量相关关系分析

Fig. 2 Correlation analysis of pond water and muscle, brain, fat about arsenic concentration

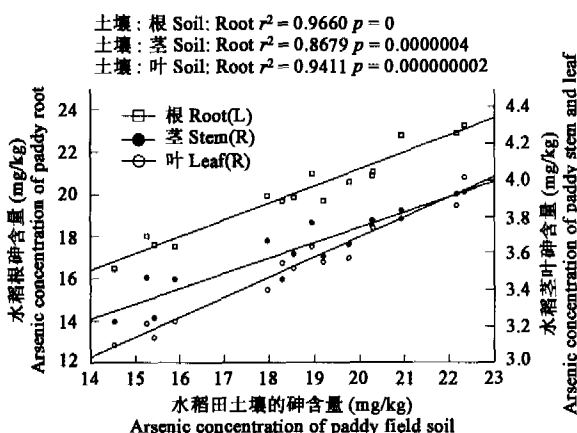


图 3 稻田土壤与水稻的根茎叶的砷含量相关关系分析

Fig. 3 Correlation analysis of paddy field soil and stem, rootstalk and leaf of rice about arsenic concentration

3 讨论

3.1 甘薯、水稻、鱼对砷的富集

甘薯根砷含量已达国家规定最高检出限(0.5 mg/kg)的 3 ~ 6 倍,并且与土壤砷含量成明显相关关系,这与有关资料表明甘薯有较强的砷富集能力相一致^[15,16];但与有关资料估计的土壤砷浓度每增加 1mg/kg,甘薯根

内砷含量将增加 0.28 mg/kg 相比^[16],调查结果与此相比有一定的差距;这可能与砷的类型及土壤性质有关。

生活在砷污染鱼塘中的鱼,可以直接从水体中富集砷,也捕食其它富集砷的浮游生物。本研究表明鱼肌肉的砷含量虽未超标,但含脂类较多的组织脂肪、鱼脑中的砷含量却远远超标;另有资料表明鱼的肌肉对砷有一定的富集能力,而造成超标现象^[17-19],这可能与鱼的品种及采食性有关。

表 6 15 个猪场排污口附近土壤砷的含量(mg/kg)

Table 6 Arsenic concentration of soil around drainage hole in 15 hog farms

猪场 Hog farm	5 m	50 m	200 m	500 m
1	34.01 ± 2.38	23.21 ± 2.09	16.82 ± 1.83	8.01 ± 1.03
2	37.47 ± 2.23	23.58 ± 1.76	17.52 ± 1.46	6.79 ± 0.95
3	28.78 ± 2.68	21.52 ± 2.03	16.52 ± 1.45	6.71 ± 0.74
4	34.43 ± 2.03	24.42 ± 1.79	15.24 ± 1.33	7.92 ± 0.87
5	33.12 ± 1.97	22.16 ± 1.62	15.40 ± 1.23	8.53 ± 0.71
6	25.00 ± 1.87	19.04 ± 1.46	14.12 ± 1.15	7.22 ± 1.11
7	33.03 ± 2.24	24.09 ± 1.68	16.63 ± 0.97	7.26 ± 1.02
8	36.65 ± 2.56	25.55 ± 1.27	16.41 ± 1.37	7.85 ± 0.74
9	26.85 ± 1.63	19.73 ± 1.68	14.14 ± 0.95	6.97 ± 1.26
10	29.79 ± 1.97	21.63 ± 1.65	15.44 ± 1.29	6.93 ± 0.77
11	38.67 ± 1.90	27.51 ± 1.72	17.16 ± 1.36	9.04 ± 1.04
12	41.96 ± 1.97	30.42 ± 1.79	18.58 ± 1.15	10.30 ± 1.19
13	34.38 ± 2.26	23.58 ± 1.23	16.57 ± 1.16	8.85 ± 1.09
14	26.69 ± 1.79	19.36 ± 1.53	13.51 ± 1.21	8.41 ± 1.10
15	36.06 ± 2.29	22.94 ± 1.37	16.96 ± 1.60	9.62 ± 0.87
Mean ± S.E	33.13 ± 1.25	23.25 ± 0.79	16.07 ± 0.37	8.03 ± 0.28

* 平均值 ± 标准误 Mean ± S.E, n = 15

表 7 长期施用猪粪作为肥料的稻田土壤及根茎叶的砷含量(mg/kg)^①

Table 7 Arsenic concentration of paddy field soil and stem, root and leaf of rice used pig manure as fertilizer

猪场 Hog farm	土壤 Soil	水稻根 Paddy root	水稻茎 Paddy stem	水稻叶 Paddy leaf
1	15.25 ± 1.74	13.89 ± 0.59	3.47 ± 0.16	3.70 ± 0.22
2	20.28 ± 2.12	18.50 ± 0.56	3.78 ± 0.23	4.03 ± 0.23
3	14.52 ± 1.24	12.88 ± 0.60	3.23 ± 0.14	3.52 ± 0.18
4	18.27 ± 1.94	16.77 ± 0.75	3.46 ± 0.26	3.89 ± 0.28
5	17.93 ± 1.35	15.49 ± 0.77	3.67 ± 0.22	3.92 ± 0.28
6	19.19 ± 1.47	16.81 ± 0.74	3.59 ± 0.16	3.89 ± 0.20
7	20.29 ± 1.58	18.43 ± 0.65	3.78 ± 0.21	4.05 ± 0.30
8	15.42 ± 1.63	13.25 ± 0.57	3.25 ± 0.23	3.65 ± 0.29
9	18.53 ± 1.66	16.49 ± 0.56	3.60 ± 0.23	3.91 ± 0.28
10	20.93 ± 1.75	18.86 ± 0.66	3.84 ± 0.21	4.25 ± 0.29
11	19.77 ± 1.50	16.98 ± 0.84	3.65 ± 0.19	3.99 ± 0.27
12	18.93 ± 1.44	17.54 ± 0.94	3.77 ± 0.19	4.04 ± 0.28
13	22.32 ± 1.84	20.83 ± 0.99	3.94 ± 0.21	4.30 ± 0.29
14	15.89 ± 1.52	14.00 ± 0.75	3.46 ± 0.23	3.64 ± 0.25
15	22.15 ± 1.52	19.49 ± 0.87	3.93 ± 0.22	4.26 ± 0.23
Mean ± S.E	18.65 ± 0.64	16.68 ± 0.62	3.63 ± 0.06	3.94 ± 0.06
对照 Control	8.76 ± 2.45	8.76 ± 2.45	1.33 ± 0.59	2.05 ± 0.09

① 平均值 ± 标准误 Mean ± S.E, n = 18

水稻对砷的富集,已引起国际上普遍关注^[20]。本研究表明水稻对砷有较强的富集能力,相关报道^[21-23]也证实了这一点;虽然本调查虽未涉及到稻米的砷含量,但有资料表明东南亚由于砷污染造成稻米的最高砷含量已达 1.7mg/kg^[24]。

3.2 猪场周围砷污染区食品的安全性问题

甘薯根、稻米、鱼是砷污染区人们日常生活中常食用的食物,人们在食用这些食品的同时可能摄入过量的砷而危害人体健康。而根据世界卫生组织(WHO)建议,成年人周摄入量为 1 mg^[25],如果人每周仅摄入 1 kg 的含砷甘薯,摄入的总砷量就将远远超标。

甘薯、水稻的茎与叶是优良畜用饲草,家畜饲喂这些饲料后,可能随食物链的传递而富集砷,进而影响人类的肉、奶、蛋等动物性食品的安全。目前,在英国等大多数发达国家规定畜用饲草最高砷含量为 0.2mg/kg^[26];本调查结果表明,甘薯与水稻的茎与叶的砷含量约是该标准的 10~40 倍;而且还有资料表明绵羊饲喂含砷的草料后,可以引起砷在其体内蓄积^[27]。

3.3 猪场周围土壤及稻田土壤的修复问题

据保守估计,2004 年全国有机肺饲料添加剂使用总量为 2×10^7 kg 左右,若按含砷约为 30% 计算,则有 6×10^6 kg 砷进入猪场周围环境及农田;如果 6×10^6 kg 砷完全进入农田,假设农田可耕作土壤的砷含量净增加 15 mg/kg(土壤砷背景值不计),而且每 666.7 m² 可耕作土壤重量按 1.5×10^5 kg 来计算,则可使全国约有 18 万 hm² 农田超过自然界砷最高背景值。由于农作物的砷含量与土壤中的砷含量呈明显的正相关,所以必须权衡利弊,采取相关措施来控制这些大量的砷流向农田,同时对已遭受砷污染的农田及猪场土壤进行修复。陈同斌等研究表明^[28,29],砷的超富集植物蜈蚣草的羽片的砷浓度可达 5070 mg/kg;国外也有报道蕨类植物是砷的超富集植物^[30]。因此,在砷污染的环境中种植蜈蚣草等蕨类植物是费用低、效率高的具有广阔前景的绿色修复技术,利用这些植物可以在较短的时间内,将土壤的砷含量降到安全值以下。

3.4 猪场鱼塘塘水的砷修复问题

大多数猪场鱼塘塘水的砷含量已超标,因此鱼塘塘水的砷修复问题也显得尤为必要。有研究表明凤眼莲对砷等重金属有较强的富集能力^[31~34],本研究同样表明凤眼莲对砷有较强的富集能力;另外,还有资料表明,其它水生植物如浮萍、莲等不仅繁殖能力强、生长迅速,而且对砷等重金属有较强的富集能力^[29,30]。因此,应在猪场水塘种植以凤眼莲、浮萍等为主的水生植物,来构建人工湿地系统,定期清除这些水生植物,可解决水塘中砷的污染。

References:

- [1] Rossan T G. Mechanism of arsenic carcinogenesis an integrated approach. Mutation Research Fundamental and Molecular Mechanism of Mutagenesis, 2003, 533: 37 ~ 65.
- [2] Roychowdhury T, Tokunaga H, Ando M. Survey of arsenic and other heavy metals in food composites and drinking water and assessment of dietary intake by the villagers form arsenic-affected area of West Bengal, India. The science of the Total Environment, 2003, 308:15 ~ 35.
- [3] Li F B, Zhong J H, Tan J. Environmental impact and its control of intensive industrialized piggery in Guangdong Province. Soil and Environmental Sciences, 1999, 8(4):245 ~ 249.
- [4] Han F X, Kingery W L, Selim H M, et al. Arsenic solubility and distribution in poultry waste and long-term amended soil. Science of the Total Environment, 2004, 320:51 ~ 61.
- [5] Sims J T, Wolf D C. Poultry waste management: agricultural and environmental issues: Advances in Agronomy, 1994, 52: 1 ~ 83.
- [6] ATTRA (the National Sustainable Agriculture Information Service), Arsenic in poultry Litter Organic Regulation, 2005. www.attra.ncat.org.
- [7] Garbarino A J, Bednar J R, Rutherford D W, et al. Environmental fate of roxarsone in poultry litter I. Degradation of roxarsone during composting. Environmental Science and Technology, 2003, 37: 1509 ~ 1514.
- [8] Rutherford D W, Bednar A J, Garbarino J R, et al. Environmental fate of roxarsone in poultry litter. Part II. Mobility of arsenic in soils amended with poultry litter. Environmental Science and Technology, 2003, 37: 1515 ~ 1520.
- [9] EPA3050B. www.epa.gov/epaoswer/hazwast/testmain.htm, revision 2, 1996.3050B: 1 ~ 12.
- [10] The People's Republic of China standard. GB/T 5009. 11-1996. Method for determination of total arsenic in food.
- [11] Statsoft, Inc. STATISTICA for Windows (Computer Program Manual). Tulsa: Statsoft, Inc., 1997.
- [12] Compilation of Chinese environment standard. Environmental quality and contamination letting. Chinese Standard Publishing Press, 2000. 96 ~ 98.
- [13] Compilation of Chinese environment standard. Environmental quality and contamination letting. Chinese Standard Publishing Press, 2000. 40 ~ 41.
- [14] Xiong X Z, Li P J, Wang Y S, et al. Environmental capacity of arsenic in soil and mathematical model. Environmental Science, 1987, 8: 81 ~ 84.
- [15] Xie H, Liao Z Y, Chen T B, et al. Arsenic in plants of farmland and its healthy risk: a case study in an As-contaminated site in Deng jiatang Chenzhou City, Hu'nan Province. Geographical Research, 2005, 24: 51 ~ 159.
- [16] Liu G L. Trace element and food chain. Science and Technology Publishing Press, 1994. 1 ~ 8.
- [17] Yuan X, Zheng C X, Wang Q. Accumulation of heavy mental in tilapia nilotica, colossoma brachypomum and cyprinus carpio. Agricultural Environmental Protection, 2001, 20(5): 357 ~ 359.
- [18] Slejkovec Z, Bajc Z, Doganoc D Z. Arsenic speciation patterns in freshwater fish. Talanta, 2004, 62: 931 ~ 936.
- [19] Liao C M, Ling M P. Assessment of human health risks for arsenic bioaccumulation in Taiapia (*Oreochromis mossambicus*) and large-scale mullet (*Liza macrolepis*) form blackfoot disease area in Taiwan. Environmental Contamination Toxicology, 2003, 45:264 ~ 272.
- [20] Meharg A A. Arsenic in rice—understanding a new disaster for South-East Asia. Trends in plant science, 2004, 9: 415 ~ 417.
- [21] Meharg A, Rahman M. Arsenic contamination of Bangladesh paddy field soils: implications for rice contribution to arsenic consumption. Environ. Sci. Technol, 2003, 37: 229 ~ 234.
- [22] Chen S Y, Xu H B, Xie M Y. Study on movement of Cu and As in rice-soil system and it's effects on rices. Rural Eco-Environment, 1995, 11(3):15 ~ 18.
- [23] Abedin Joinal Md, Cotter-Howells J. Arsenic uptake and accumulation in rice (*Oryza sativa*) irrigated with contaminated water. Plant and Soil, 2002, 240: 311 ~ 319.
- [24] Meharg A A, Rahman M D. Arsenic contamination of Bangladesh paddy field soils: implication for rice contribution to arsenic consumption. Environmental Science & Technology, 2003, 37: 229 ~ 234.
- [25] World Health Organization (WHO). Environmental Health Criteria 18, Arsenic, International Programme on Chemical Safety, Guidelines for Drinking water Quality. Genva, Sw itezerland, 1984. 1 ~ 53.

- [26] Nicholson F A, Chambers B J, Williams J R, *et al.* Heavy metal contents of livestock feeds and animal manures in England and Wales. *Bioresource Technology*, 1999, 70: 23 ~ 31.
- [27] Feldmann J, John K, Pengprecha P. Arsenic metabolism in seaweed-eating sheep from Northern Scotland. *J. Anal. Chem*, 2003, 368: 116 ~ 121.
- [28] Chen T B, Wei C Y, Huang Z C, *et al.* Arsenic hyperaccumulator *Pteris vittata* L. and its arsenic accumulation. *Chinese Science Bulletin*, 2002, 47: 207 ~ 210.
- [29] Chen T B, Fan Z L, Lei M, *et al.* Effect of phosphorus on arsenic accumulation in As-hyperaccumulator *Pteris vittata* L. and its implication. *Chinese Science Bulletin*, 2002, 47: 1156 ~ 1158.
- [30] Ma L Q, Komar K M, Tu C, *et al.* A fern that hyperaccumulates arsenic. *Nature*, 2001, 409: 579.
- [31] Pilon-Smits E A H, de Souza M P, Hong G. Volatilization and accumulation by twenty aquatic plant species. *J. Environ. Qual.*, 1999, 128(3): 1011 ~ 1018.
- [32] Qian J H, Zayed A, Zhu YH. Phytoaccumulation of trace elements by wetland plants III. Uptake and accumulation of trace elements by twelve plant species. *J. Environ. Qual.*, 1999, 28 (5): 1448 ~ 1455.
- [33] So L M, Chu L M, Wong P K. Microbial enhancement of Cu^{2+} removal capacity of *Eichhornia crassipes*. *Chemosphere*, 2003, 52: 1499 ~ 1503.
- [34] Cordes K B, Mehra A, Farago M E, *et al.* Uptake of Cd, Cu, Ni, and Zn by the water Hyacinth, *Eichhornia crassipes* Solms from Pulverised Fuel Ash (PFA) Leachates and Slurries. *Environmental Geochemistry and Health*, 2000, 22: 297 ~ 316.

参考文献:

- [3] 李芳柏, 钟继洪, 谭军. 广东集约化养猪业的环境影响及防治对策. *土壤与环境*, 1999, 8(4): 245 ~ 249.
- [10] 中华人民共和国国家标准. GB/T 5009. 11-1996. 食品中总砷的测定方法.
- [12] 中国环境标准汇编. 环境质量与污染物排放. 中国标准出版社. 2000. 96 ~ 98.
- [13] 中国环境标准汇编. 环境质量与污染物排放. 中国标准出版社. 2000. 40 ~ 41.
- [16] 刘更另. 矿质微量元素与食物链. 农业科技出版社, 1994. 1 ~ 8.
- [17] 阮晓, 郑春霞, 王强. 重金属在罗非鱼淡水白鲢和鲤鱼体内的蓄积. *农业环境保护*, 2001, 20(5): 357 ~ 359.
- [22] 陈树元, 徐和宝, 谢明云. 铜、砷在水稻-土壤体系中的迁移及对水稻影响的研究. *农村生态环境*, 1995, 11 (3): 15 ~ 18.
- [28] 陈同斌, 韦朝阳, 黄泽春, 等. 超富集植物蜈蚣草及其对砷的富集特征. *科学通报*, 2002, 47(3): 207 ~ 210.
- [29] 陈同斌, 范稚莲, 雷梅, 等. 磷对超富集植物蜈蚣草吸收砷的影响及科学意义. *科学通报*, 2002, 47(15): 1156 ~ 1158.